

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Jiro HIRAIWA, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: ELECTROLYTIC APPARATUS FOR MOLTEN SALT

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS  
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number \_\_\_\_\_, filed \_\_\_\_\_, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e):  
Application No. \_\_\_\_\_ Date Filed \_\_\_\_\_

- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

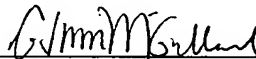
<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	2003-013778	January 22, 2003

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number \_\_\_\_\_  
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. \_\_\_\_\_ filed \_\_\_\_\_; and
- ☐ (B) Application Serial No.(s) \_\_\_\_\_  
☐ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
Marvin J. Spivak

Registration No. 24,913

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 05/03)

C. Irvin McClelland  
Registration Number 21,124

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日                      2003年 1月22日  
Date of Application:

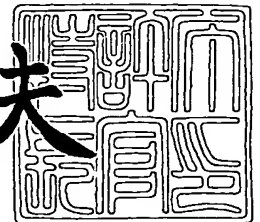
出願番号                      特願2003-013778  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [JP 2003-013778]

出願人                      東洋炭素株式会社  
Applicant(s):

2003年11月18日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号    出証特2003-3095151

【書類名】 特許願

【整理番号】 30122030

【提出日】 平成15年 1月22日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C25B 9/00

【発明の名称】 熔融塩電解装置

【請求項の数】 8

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西淀川区竹島 5 - 7 - 1 2 東洋炭素株式会社内

【氏名】 平岩 次郎

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西淀川区竹島 5 - 7 - 1 2 東洋炭素株式会社内

【氏名】 吉本 修

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市西淀川区竹島 5 - 7 - 1 2 東洋炭素株式会社内

【氏名】 東城 哲朗

【特許出願人】

【識別番号】 000222842

【氏名又は名称】 東洋炭素株式会社

【代理人】

【識別番号】 100089196

【弁理士】

【氏名又は名称】 梶 良之

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100104226

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 須原 誠

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014731

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9702752

【包括委任状番号】 0000589

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熔融塩電解装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、

前記電解槽の本体を加熱及び／又は冷却するための第 1 熱交換手段と、

前記第 1 熱交換手段に対して更に空間を隔てた外周に、前記第 1 熱交換手段を密閉して配置された外枠と、

前記外枠内に形成された減圧乃至真空の断熱層と、を備えてなる熔融塩電解装置。

【請求項 2】 前記電解槽は、さらに前記電解槽の本体を加熱する第 2 熱交換手段を備えてなる請求項 1 に記載の熔融塩電解装置。

【請求項 3】 混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、

前記電解槽の本体を加熱及び／又は冷却するための第 1 熱交換手段と、

前記電解槽の電氣的絶縁性とガスシール性が同時に必要な個所に電気絶縁材料とガスシール材とを備えてなる熔融塩電解装置。

【請求項 4】 混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、

前記電解槽の電氣的絶縁性とガスシール性が同時に必要な個所に電気絶縁材料とガスシール材とを備えてなる請求項 1 または 2 に記載の熔融塩電解装置。

【請求項 5】 前記第 1 熱交換手段は、前記電解槽に熱交換媒体が流れる流路が形成されてなる請求項 1 乃至 4 に記載の熔融塩電解装置。

【請求項 6】 前記熱交換媒体が、電気絶縁性の高い流体であることを特徴とする請求項 5 に記載の熔融塩電解装置。

【請求項 7】 前記電解槽は、上部が開放された箱体に収納されている請求項 1 乃至 6 に記載の熔融塩電解装置。

【請求項 8】 前記混合熔融塩がフッ化水素を含むものである請求項 1 乃至 7 に記載の熔融塩電解装置。

**【発明の詳細な説明】****【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、熔融塩電解装置に関し、さらに詳しくいえば小型化が可能でしかもシール性に優れた熔融塩電解装置に関する。

**【0002】****【従来の技術】**

例えば、フッ素ガスは半導体製造分野において、欠くことのできない基幹ガスである。そして、それ自体で用いられる場合もあるが、特にフッ素ガスを基にして合成された三フッ化窒素ガス（以下、 $\text{NF}_3$ ガスという。）は半導体のクリーニングガスやドライエッチングガスとして急速に需要が伸びている。また、フッ化ネオンガス（以下、 $\text{NeF}$ ガスという。）、フッ化クリプトンガス（以下、 $\text{KrF}$ ガスという。）等は半導体集積回路のパターニングの際に用いられるエキシマレーザー発振用ガスであり、その原料には希ガスとフッ素ガスの混合ガスが多用されている。

**【0003】**

半導体の製造に使用されるフッ素ガスや $\text{NF}_3$ ガスは不純物の少ない高純度のガスが要求される。また、半導体等の製造現場ではフッ素ガスを充填したガスボンベから必要量のガスを取り出して使用している。このためガスボンベの保管場所、ガスの安全性確保や純度維持等の管理が大変重要となる。さらに $\text{NF}_3$ ガスは最近になって需要が急激に増加しているため供給面に問題があり、ある程度の在庫を抱えなければならないという問題もある。これらを勘案すると、高圧のフッ素ガスを扱うよりもフッ素ガス発生装置をオンサイトで使用する方が好ましい。

**【0004】**

通常、フッ素ガスは図6に示すような電解槽で発生させる。電解槽本体201の材質は通常、ニッケル（以下、 $\text{Ni}$ という。）、モネル、炭素鋼等が使用されている。電解槽本体201の外周には電解浴202の温度を電気分解が可能な一定の温度に維持するための加熱及び／又は冷却装置214が配設されている。電

解槽本体 201 中には、フッ化カリウム-フッ化水素系（以下、KF-HF系という。）の混合熔融塩が電解浴 202 として満たされている。そして、モネル等により形成されている隔壁 209 によって、陽極室 210 と陰極室 211 とに分離されている。この陽極室 210 に収納された炭素または Ni 陽極 203 と、陰極室 211 に収納された Ni 又は鉄からなる陰極 204 との間に電圧を印加し、電解浴 202 を電気分解してフッ素ガスを発生させる（例えば、特許文献 1 参照）。

#### 【0005】

##### 【特許文献 1】

特表平 9-505853 号公報

#### 【0006】

##### 【発明が解決しようとする課題】

ところが、前述の半導体製造工場等の現場にフッ素ガス発生装置を設置する場合、設置条件の制約が多く、装置自体の小型化は非常に重要である。電解装置を小型化するには、電解装置の運転に必要な温度保持の熱交換部材等の配置場所自体を見直しする必要がある。

#### 【0007】

通常、電解装置は電解条件を一定にするため電解装置の周囲に設けられたヒーター等の加熱装置の温度制御を行って電解槽内の電解浴の温度を一定にするとともに、ヒーターを含む電解槽の周囲に設けられた断熱材により電解槽の温度が急激に変化しないように断熱することでエネルギー効率を引き上げ、また外周の温度を上昇させないことで作業員の火傷等を防止する必要がある。一般的に断熱材としては石綿、ウレタン等が使用されているが、その断熱性能は不十分だけでなく、断熱材自体が露出すると周囲に断熱材を構成する繊維や粉塵等の所謂パーティクルが飛散して作業環境の面でも問題となっていた。

#### 【0008】

また、従来の工業用電解槽では、電解槽内のガス発生部分のシール材として板状パッキンを使用して、電解槽外部の空気等の雰囲気ガスの電解槽内への侵入や電解槽内に発生したフッ素や水素等のガスが電解槽外部に漏出するのを防止して

いる。しかし、そのような板状パッキンを使用しても電解槽の気密性は十分に保てるとはいえなかった。また、電解用電極とターミナルとの接続部分の電氣的絶縁性の面でも十分とはいえなかった。

#### 【0009】

そこで、本発明は小型化が可能な熔融塩電解装置を提供することを目的とする。また、本発明は、電解装置の電氣的絶縁性、ガスシール性、熱及び発生ガスに対する安全性に優れた熔融塩電解装置を提供することをさらなる目的とする。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは電解槽自体の小型化、断熱部分すなわち熱交換部分の断熱構造、電氣的絶縁性の向上、ガスリーク性、作業安全面について鋭意検討を重ね、本発明を完成するに至ったものである。

#### 【0011】

すなわち、本発明の請求項1に係る発明は、混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、前記電解槽の本体を加熱及び／又は冷却するための第1熱交換手段と、前記第1熱交換手段に対して更に空間を隔てた外周に、前記第1熱交換手段を密閉して配置された外枠と、前記外枠内に形成された減圧乃至真空の断熱層と、を備えてなる熔融塩電解装置を要旨とする。

#### 【0012】

本発明では、減圧乃至真空断熱構造を有するので、石綿、ウレタン等の断熱材による断熱層と比較して熱伝導係数が大幅に小さくなり、断熱層の厚み自体を薄くすることが可能となる。そのため電解装置を小型化することができ、且つ安全性が向上し、さらに加熱に要する加熱エネルギーの損失を減少させることが可能となる。また、パーティクルの発生もない。

#### 【0013】

なお、本発明でいうところの熱交換とは、電解槽本体を加熱、冷却、あるいはその両方によって熱を交換することを意味する。これによって、加熱あるいは冷却される電解槽と第1熱交換手段が熱的に結合することにより熱交換効率を向上



させることが可能となる。また、減圧乃至真空の目安としては、凡そ  $10\text{ kPa}$  ～  $100\text{ Pa}$  に減圧することが好ましい。 $10\text{ kPa}$  に満たないと熱伝導が低く断熱効率が低下する。また、 $100\text{ Pa}$  よりも低くするには大掛かりな設備を別途設ける必要が生じ、コスト高になるので好ましくない。従って、 $10\text{ kPa}$  ～  $1\text{ kPa}$  の範囲内に減圧することがさらに好ましい。

#### 【0014】

請求項 2 に係る発明は、前記電解槽が、さらに前記電解槽の本体を加熱する第 2 熱交換手段を備えてなる請求項 1 に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。本発明でいう第 2 熱交換手段とは、請求項 1 でいうところの第 1 熱交換手段だけでは加熱しづらい部分、あるいは請求項 1 よりもさらに精密な温度制御を必要とする部分等に付加した加熱、冷却、あるいはその切り替えが可能な熱交換手段をいい、例えば、電解槽底部に設けられた加熱部材、HF 供給配管等に設けたヒーターを例示することができる。

#### 【0015】

請求項 3 に係る発明は、混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、前記電解槽の本体を加熱及び／又は冷却するための第 1 熱交換手段と、前記電解槽の電氣的絶縁性とガスシール性が同時に必要な個所に電気絶縁材料とガスシール材とを備えてなる熔融塩電解装置を要旨とする。電気絶縁材料とは、JIS K 6911 による体積固有抵抗が凡そ  $10^6\Omega\cdot\text{m}$  以上の固有抵抗を有する材料が例示できる。なお、電気絶縁材料としては、発生するフッ素ガス等の発生ガスに対して耐食性を有する材料で構成することが好ましく、フッ素化ゴム、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE)、PFA 等のフッ素樹脂が例示できる。電気絶縁性材料を電解槽と上蓋との間に挟み込むことにより、絶縁性を向上させることができる。また、ガスシール材としては、電気絶縁材料と同様に、発生するフッ素ガスや、HF ガス等の発生ガスに対して耐食性を有する材料で構成することが好ましく、且つ気密性と弾力性を有する材料で構成することがさらに好ましく、フッ素化ゴム等が例示できる。ガスシール材は、フッ素ガス、HF ガス等に晒され難い場所に設けることが好ましい。また、ガスシール性を有するとは、電解装置の使用圧力の 1.1 倍以上のガ

ス圧で $N_2$ （窒素）を密封して24時間保持したときの圧力変動が温度補正した後の値で±1%以下の条件を満たすものである。このように構成することによって、外部の気体が電解槽に侵入するのを抑制することができるので、発生するガスの純度を向上させることが可能になる。また、電解浴を電気分解することで発生したガスが、電解槽外部に漏出しにくくなるので作業環境の改善や安全性を向上させることが可能となる。

#### 【0016】

請求項4に係る発明は、混合熔融塩からなる電解浴を電気分解するための電解槽が設けられた熔融塩電解装置であって、前記電解槽の電氣的絶縁性とガスシール性が同時に必要な個所に電気絶縁材料とガスシール材とを備えてなる請求項1または2に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。このように構成にすることにより上述した電氣的絶縁効果、気密性、発生ガスの純度、安全性がさらに向上する。

#### 【0017】

請求項5に係る発明は、前記第1熱交換手段には、前記電解槽に熱交換媒体が流れる流路が形成されてなる請求項1乃至4に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。これにより熱交換媒体が循環するので前記電解槽を効率よく加熱あるいは冷却を行うことができ、例えば電解浴の原料となる塩の熔融や、電解時に発生する熱の除去が効率良く実施できる。

#### 【0018】

請求項6に係る発明は、前記熱交換媒体が、電気絶縁性の高い流体であることを特徴とする請求項5に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。このように構成することにより、電解槽本体が陰極となっている場合に熱媒体からの漏電を防止できる。電氣的に絶縁性の高い流体とは例えば、水、フッ素化オイル、シリコンオイル等の液体や、 $Ar$ ガス、 $He$ ガス等の気体が例示できるが、これらに限定されるものではない。なお、入手の容易性等を勘案すれば、水さらには純水を使用することが好ましい。

#### 【0019】

請求項7に係る発明は、前記電解槽が、上部が開放された箱体に収納されてい

る請求項 1 乃至 6 に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。箱体は、電解槽と電解槽外部とを遮蔽する目的で設けられる。箱体の材質は、電解によって発生した発生ガス、電解浴成分に対する耐食性及び耐熱性を有するものであれば特に限定されるものでなく、例えば、ステンレス鋼等の金属や、フッ素樹脂（ポリテトラフルオロエチレン）等が例示できる。また、箱体を設ける場所としては電解浴の液漏れを防止することができる場所、例えば電解槽の底部に設けることが好ましい。

#### 【0020】

請求項 8 に係る発明は、前記混合熔融塩がフッ化水素を含むものである請求項 1 乃至 7 に記載の熔融塩電解装置を要旨とする。

#### 【0021】

##### 【発明の実施の形態】

以下、図 1 乃至図 5 に基づいて本発明に係るフッ素ガス発生装置の実施形態の一例を説明する。図 1 は、本実施形態例のフッ素ガス発生装置の主要部の概略説明図である。図 2 は外枠の内部構造を示す電解槽の外観図である。図 3 は電解槽の断面図である。図 4 は図 3 における A 部の拡大断面図である。図 5 は図 3 における B 部の拡大断面図である。

#### 【0022】

図 1 は、フッ素ガス発生装置（熔融塩電解装置）の構成を示しており、1 は電解槽本体 1 a と上蓋 1 7 とで構成された電解槽であり、2 は K F - H F 系混合熔融塩からなる電解浴、3 は陽極室、4 は陰極室、5 は陽極、6 は陰極である。2 2 は陽極室 3 から発生するフッ素ガスの発生口である。1 1 は電解浴 2 中の温度を計測する温度計であり、1 3 は電解槽 1 の熱交換手段であり、1 2 は熱交換手段 1 3 に温水を供給する温水加熱装置である。5 1 は熱交換手段 1 3 を構成する、電解槽 1 の側面に設けられた温水ジャケットであり、5 2 は熱交換手段 1 3 を構成する、電解槽 1 の底面に設けられた加熱部材（第 2 熱交換手段）である。

#### 【0023】

電解槽 1 は、N i 、モネル、純鉄、ステンレス鋼等の金属で形成されている。電解槽 1 の内部は、N i またはモネルからなる隔壁 1 6 によって、電解槽 1 の中

心部に位置する陽極室 3 及び陰極室 4 とに分離されている。陽極室 3 には、陽極 5 が配置されており、陰極室 4 には、陰極 6 が設けられている。陽極 5 には低分極性炭素電極を使用することが好ましい。また、陰極 6 としては、Ni の成形体を所定の形状に加工したものを使用することが好ましい。

#### 【0024】

また、電解槽 1 を構成する電解槽本体 1 a の上部の外周部には、上蓋 1 7 の周縁部と接続するフランジ部 1 b が形成されている。このフランジ部 1 b と上蓋 1 7 とが接続するフランジ部 1 b 側の面には、図 2 及び図 3 に示すように凹形状の溝 1 c が周設されている。

#### 【0025】

図 3 及び図 4 に示すように上蓋 1 7 は、ボルト 3 0 でフランジ部 1 b に形成されたネジ部 3 1 に取付けられて固定されており、ボルト 3 0 と上蓋 1 7 との間には、電気絶縁性ブッシング 3 2 が介在されている。このように電気絶縁性ブッシング 3 2 が介在されることで上蓋 1 7 と電解槽本体 1 a とがボルト 3 0 を介して通電しないように絶縁されている。また、フランジ部 1 b と上蓋 1 7 の周縁部との間には、電気絶縁材料 9 とガスシール材 1 0 とが介在されている。このガスシール材 1 0 には、フッ素ガスに対して耐食性のあるフッ素ゴムからなる O リングが使用されており、フランジ部 1 b の溝 1 c 内に配置されている。なお、フランジ部 1 b の上蓋 1 7 側の面には、所定間隔で複数のネジ部 3 1 が形成されており、その数と同じ数のボルト 3 0 で上蓋 1 7 がフランジ部 1 b に固定されている。

#### 【0026】

また電気絶縁材料 9 は、フランジ部 1 b に設けられたガスシール材 1 0 の内外周側（図 3 中左右両側）で、フランジ部 1 b と上蓋 1 7 の周縁部との面に沿うように配置されている。この電気絶縁材料 9 を構成する材質としてはポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等を使用することができる。

#### 【0027】

電気絶縁材料 9 とガスシール材 1 0 とを挟むようにして上蓋 1 7 と電解槽本体 1 a との間に介在させることによって、容易に上蓋 1 7 を電解槽本体 1 a から取り外すことができる。また、ガスシール材 1 0 を電解槽本体 1 a と上蓋 1 7 との

間に挟み込んでいるので電解槽 1 内のフッ素ガスや水素ガス、フッ化水素等のガスが漏出せず、外気が電解槽 1 に侵入するのを防止することができる。また、電気絶縁材料 9 によって、上蓋 17 と電解槽本体 1 a とが通電しないように電氣的に絶縁されている。

#### 【0028】

図 1 に示すように電解槽 1 の上蓋 17 には、陽極室 3 から発生するフッ素ガスの発生口 22 と、陰極室 4 から発生する水素ガス発生口 23 と、HF を供給する HF 供給ライン 24 の HF 導入口 25 と、陽極室 3 及び陰極室 4 の内部圧力をそれぞれ検知する圧力計 7, 8 と、が設けられている。

#### 【0029】

また、図 5 に示すように上蓋 17 の略中央部には、陽極 5 を電解槽本体 1 a 内に挿入する開口部 35 が形成されており、その開口部 35 を覆うように蓋体 36 が設けられている。この蓋体 36 には、陽極 5 を取付ける連結棒 37 が垂直に設けられている。連結棒 37 の下端部には、断面が L 字形状の取付け部 38 が形成されており、陽極 5 の上端部に形成された貫通孔（不図示）に挿通された連結ボルト 39 で取付け部 38 に固定されている。

#### 【0030】

この蓋体 36 と上蓋 17 との間には、前述した電気絶縁材料 9 とガスシール材 10 と同様の材質の電気絶縁材料 9 a と O リング 10 a とが配置されている。このように電気絶縁材料 9 a と O リング 10 a とを挟むようにして蓋体 36 と上蓋 17 との間に介在させることによって、電解槽 1 内のフッ素ガスや水素ガス、フッ化水素等のガスが漏出せず、外気が電解槽 1 に侵入するのを防止することができる。また、蓋体 36 の外表面には絶縁塗装が施されており、さらに電氣的な接続部分（端子台）には電氣的に絶縁である樹脂製の被覆を被せて外部との短絡が防止されるようになっている。

#### 【0031】

上蓋 17 に設けられたガス発生口 22, 23 は、ステンレス鋼等のフッ素ガスに対して耐食性を有した材料で形成された管を備えている。また、HF 供給ライン 24 は HF の液化を防止するための温度調整用ヒーター（第 2 熱交換手段）2

4 a に覆われている。

#### 【0032】

図2に示す熱交換手段13は、電解槽1の側面外周を取り巻くように配設された温水ジャケット51と、電解槽1の底面に配設された加熱部材（第2熱交換手段）52とで構成されている。この温水ジャケット51は、電解槽1の側面外周に配置され、内部に熱媒体が通過する通路53a（図3参照）を有する温水パイプ（第1熱交換手段）53と、温水パイプ53に対して更に空間を隔てた外周に、温水パイプ53を密閉して配置された外枠54内に形成された真空断熱層55とを備えている。

#### 【0033】

温水パイプ53は、電解槽1の側面外周を水平方向に取り巻くように一定間隔で配置されており、図示しない接続部で温水パイプ53同士が接続され、連通している。また、温水パイプ53の材質は、熱伝導性の良い銅からなる金属パイプが好適であるが、特に限定されるものでなく、例えば、鉄、ステンレス鋼、アルミニウム等の金属製パイプでも適用することができる。

#### 【0034】

この温水パイプ53の形状は、図2に示すように角パイプ形状であれば、電解槽1の側面との接触面積を大きく取れるので、熱媒体が有する熱エネルギーを効率よく電解槽1に伝えることができ好適であるが、特に限定されるものではない。例えば、丸パイプ、三角形のパイプ、丸パイプの中心軸を通るようにして半分に切断したような半月状のパイプ等を適用することが可能である。つまり、半月状パイプであれば、半月状パイプを電解槽1の側面に配置させると、半月状パイプと、電解槽1の外周の側面と、の間には、電解槽1の外周を含んで形成された通路が得られる。この通路に後述する熱媒体を流通させ、温水パイプ53と同様なものとすることができる。

#### 【0035】

また、温水パイプ53は、温水パイプ53の長手方向に沿って所定間隔において電解槽1の側面に溶接で溶接部を設けて取付けられており、温水パイプ53の長手方向に沿う溶接部同士の間、高い熱伝導率を有するシール材を付着させて

いる。このように、シール材を付着させることで、温水パイプ53と電解槽1の側面との接触面積を大きくし、温水パイプ53からの熱伝達効率を向上させることができる。

#### 【0036】

なお、前述した半月状パイプも、半月状パイプの長手方向に所定間隔をおいて、電解槽1の側面に溶接で溶接部を設けて取付けることができる。そして、溶接部同士の間、前述したシール材を埋め込むことで、前述した通路から熱媒体が漏出することを防止するとともに、半月状パイプに伝わる熱媒体の熱エネルギーを前述した温水パイプ53のようにシール材を介して電解槽1に伝えることができる。

#### 【0037】

また、温水パイプ53の通路53a内には、図1に示す温水加熱装置12で加熱された熱媒体が循環している。この熱媒体は純水からなり、純水を温水加熱装置12で加熱した温水56が、図2の矢印方向に循環している。

#### 【0038】

このような第1熱交換手段である温水パイプ53の通路53aに熱媒体を循環させているため、第1熱交換手段を清浄な密閉可能なものとすることができる。また、純水を熱媒体として用いるため、後述するような陰極化した電解槽本体1aと熱媒体とが絶縁状態となり、その電解槽本体1aと熱媒体との間で電氣的な短絡の発生を防止することができる。つまり、不純物を含まない純水であれば、電気を通しにくいので、純水を介して温水加熱装置12から電気が伝わりにくく、電解槽本体1aと熱媒体である純水との間で電氣的リークが発生しにくくなる。

#### 【0039】

なお、温水パイプ53と接続している温水加熱装置12からの配管は、配管自体が絶縁体または配管同士が接続される接続部に絶縁体を介して接続することで、温水加熱装置12から配管を伝わる電気を絶縁することができる。また、本実施形態例においては、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）製のホースを配管に適用している。

## 【0040】

また、外枠54には図示しない逆止弁が設けられており、その逆止弁から外枠54と温水パイプ53との間に形成された真空断熱層55から空気を図1に示す減圧機14等で引き抜くことにより、真空断熱層55を減圧乃至真空の断熱層としている。従って、温水パイプ53の通路53aに熱媒体が流通することで発生した熱が外部に放出しにくくなるとともに、電解槽1に接した温水パイプ53によって効率的に電解槽1が加熱される。また、真空断熱層55が減圧乃至真空であるために、半導体製造工程において、不良の一因となる断熱層からのパーティクルが発生しない。このため、半導体製造工程でオンサイトで使用することが可能となる。また、外枠54により温水パイプ53が囲まれた状態であるため、電解槽1の周囲の雰囲気温度が上昇せず清浄に保たれ、作業者の火傷等も防止できるので安全性が向上する。

## 【0041】

加熱部材52は、電解槽1の底面側に配置されたゴム製の絶縁層52aと、内部にニクロム線が全面に配設された加熱層52bと、が積層してプレート状に構成されている。この加熱部材52は、図示しない電源からニクロム線に通電することで、そのニクロム線が加熱され、絶縁層52aを介して、電解槽1の底面を加熱する。したがって、電解槽1の底面からの熱放出が加熱部材52によって阻止することができる。また、加熱部材52がプレート状に構成されているため、電解槽1はその底面で安定して設置される。

## 【0042】

また、前述した温水ジャケット51に純水を加熱した温水を供給する温水加熱装置12は、温水56を加熱する図示しない熱媒体加熱手段と、熱媒体加熱手段を制御する図示しない温度制御装置と、を備えている。また、温水加熱装置12は、電解槽1内の電解浴2の温度を計測する温度計11と、電解槽1内の電解浴2を加熱する温水ジャケット51と、に接続されており、温度計11からの温度情報をもとに電解槽1の温度を一定に保つように温水56を温水ジャケット51に供給する。

## 【0043】



このように温水ジャケット 51 は、減圧乃至真空断熱構造を有するので、石綿、ウレタン等の断熱材による断熱層と比較して熱伝導係数が大幅に小さくなり、断熱層 55 の厚み自体を薄くすることが可能となる。そのため電解装置を小型化することができ、且つ安全性が向上し、さらに加熱に要する加熱エネルギーの損失を減少させることが可能となる。また断熱材によるパーティクルの発生もなくなる。

#### 【0044】

以上のような電解槽 1 は、図 1 に示すように上部が開放された箱体 60 に収納されている。この箱体 60 は、電解槽 1 の底面より若干大きい長方形形状を有した底面板 61 と、電解槽 1 の側面より若干大きい長方形形状をした 4 つの側壁板 62 とを有し、底面板 61 と 4 つの側壁板 62 とが接続されている接続部には、内方よりシール材が介在させられている。この接続部にシール材を介在しているので箱体 60 から水等が漏出するのを防止できる。

#### 【0045】

箱体 60 の材質や形状は特に限定されるものではなく、電解槽本体 1a を収納し、温水ジャケット 51 や、温水加熱装置 12 からの配管と温水ジャケット 51 との接続部等から温水 56 が漏出した際に、電解槽 1 が配置された場所に温水 56 が拡がらないようにすることができれば良いものである。したがって、温水パイプ 53 等から熱媒体である加熱された純水（温水 56）が、外部に漏出することを防止できる。

#### 【0046】

続いて、本実施形態例であるフッ素ガス発生装置の作動について説明する。電解槽 1 内の陽極 5 と陰極 6 に電圧が印加され、電解浴 2 が正常に電気分解されている状態では、陽極 5 からフッ素ガスが、陰極 6 から水素ガスが発生する。こうして、陽極 5 から発生したフッ素ガスは、陽極室 3 上部のフッ素ガス発生口 22 からラインに供給される。また陰極 6 から発生した水素ガスは、陰極室 4 上部の水素ガス発生口 23 からラインに供給される。

#### 【0047】

そして、一連の電解により電解浴 2 が減少すると図示しない液面検知手段が作

動し、これと連動してHF供給ライン24からHF供給口25を通して電解浴2にHFが供給される。このように電解浴2を陽極5、陰極6で電解し、電解原料であるHFが減少すると電解浴2に対してHFを供給して常に電解浴中のHF濃度を最適な状態に維持して、常に同じ電気分解状態を得られるようになっている。

#### 【0048】

また、電解浴2を用いた電解を効率よく行うために、電解浴2は熱交換手段13によって電解槽1を介して最適な温度に暖められている。この電解浴2中の温度を監視している温度計11と、温水ジャケット51に供給する純水を加熱する温水加熱装置12と、プレート状の加熱部材52とによって電解浴2が最適な温度に保たれている。

#### 【0049】

また、温水ジャケット51は、外枠54によって減圧乃至真空断熱層55が形成されているため、発生する熱エネルギーを効率よく電解槽1の外周の側面を介して電解浴2に伝える（加熱する）ことができ、且つ温水ジャケット51外周の温度上昇を防止できる。したがって、熱交換手段13の外周雰囲気悪化を防止するとともに、熱交換手段13によるエネルギー浪費を防止し、電解浴2が適切な温度に保たれ効率よく、陽極5と陰極6によって電解が行われ、常に安定したフッ素ガスを製造できる。

#### 【0050】

なお、本発明に係る溶融塩電解装置については電気分解によってフッ素ガスの発生を行うフッ素ガス発生装置を中心に説明したが、本発明に係る溶融塩電解装置は前述したフッ素ガス発生装置に限定されるものではなく、他の電解装置であっても本発明の技術思想を使用するときは本発明の技術的範疇に属するものである。また、温水ジャケット51に温水56を供給する温水加熱装置12は、熱交換媒体（純水）を加熱するだけのものでなく、熱交換媒体を加熱及び冷却するものも適用することが可能である。このような温水加熱装置を適用することで素早く電解槽1内の電解浴2の温度調整が可能となる。

#### 【0051】

**【発明の効果】**

本発明は減圧乃至真空断熱層を形成しているので従来の電解装置よりも小型化できる。したがって、外部への熱放出を低減でき、効率的に電解槽が加熱されて熱交換手段によるエネルギー浪費を防止できる。また、断熱層が減圧乃至真空であるために、半導体製造工程において、不良の要因の一つとなる断熱層からのパーティクルの飛散を防止できる。また、ガスシール材、電気絶縁材料にも工夫を施したので電氣的絶縁性、ガスシール性が向上し、純度の高いガスを得ることができ発生ガスの漏出を低減できるようになり、半導体製造工程でオンサイトで使用することが可能となる。

**【図面の簡単な説明】****【図 1】**

本実施形態例のフッ素ガス発生装置の主要部の概略説明図である。

**【図 2】**

外枠の内部構造を示す電解槽の外観図である。

**【図 3】**

電解槽の断面図である。

**【図 4】**

図 3 における A 部の拡大断面図である。

**【図 5】**

図 3 における B 部の拡大断面図である。

**【図 6】**

従来使用していたフッ素ガス発生装置の模式図である。

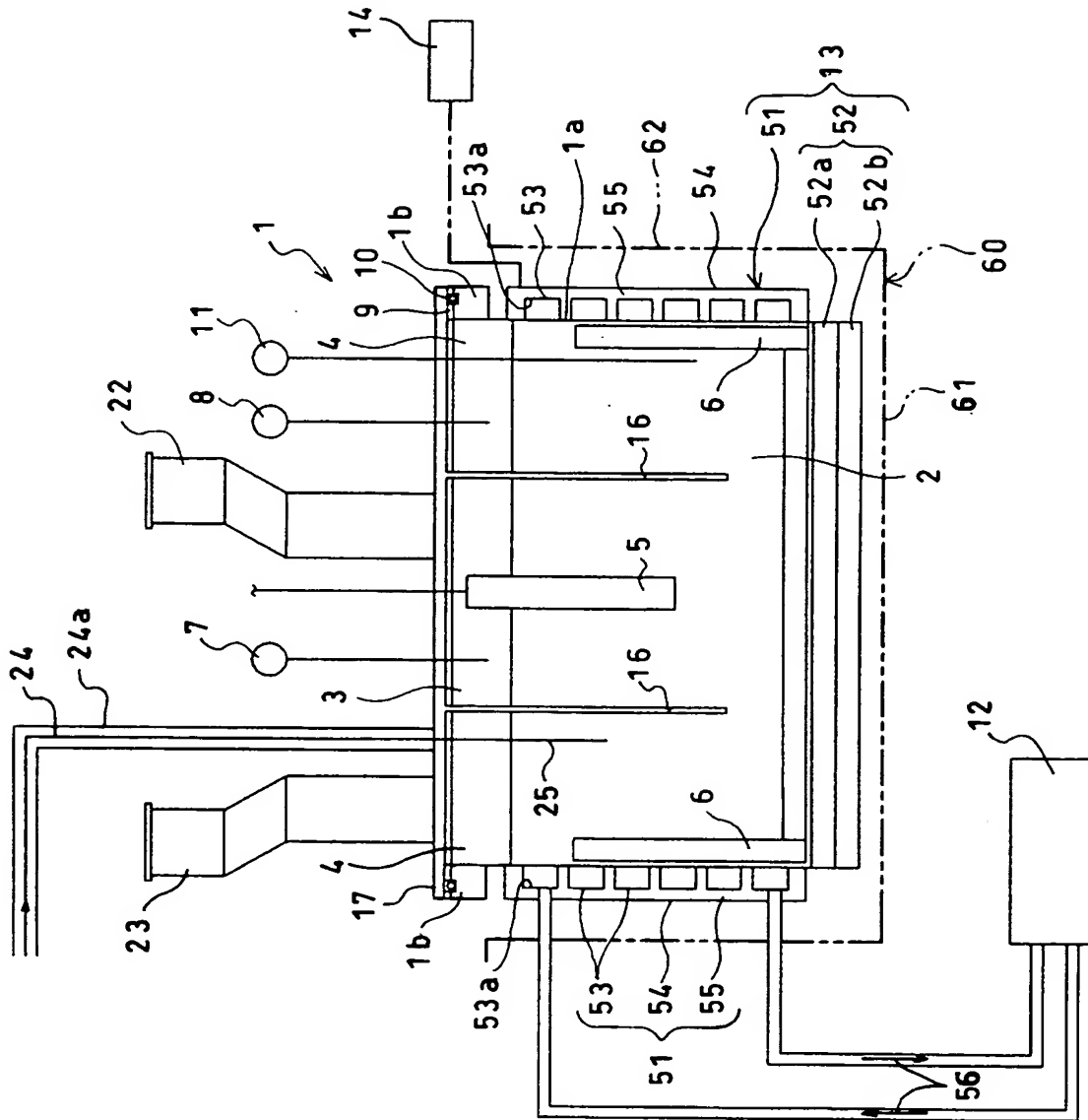
**【符号の説明】**

- 1 電解槽
- 1 a 本体
- 2 電解浴
- 3 陽極室
- 4 陰極室
- 5 陽極

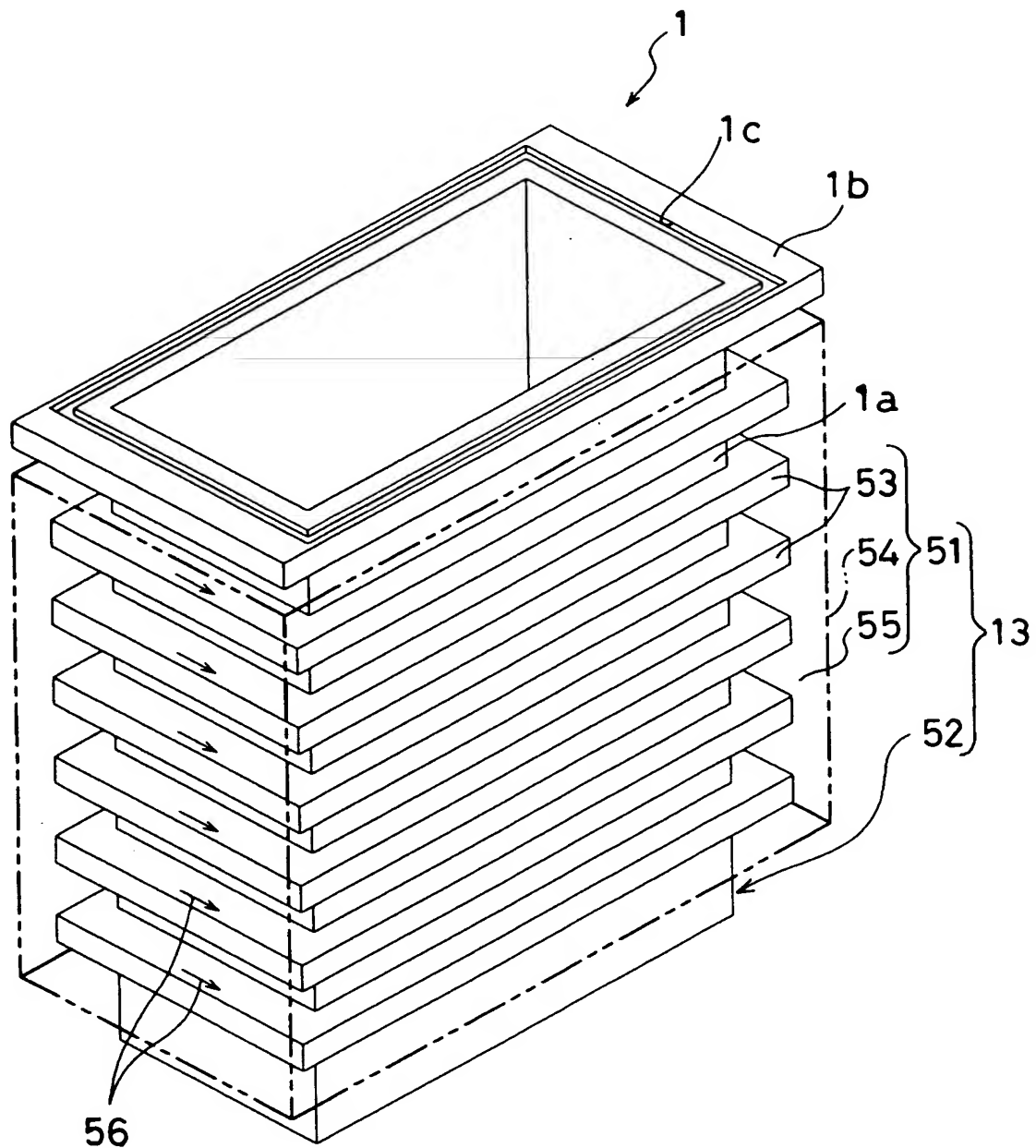
- 6 陰極
- 9 電気絶縁材料
- 1 0 ガスシール材
- 1 3 熱交換手段
- 1 7 上蓋
- 5 2 加熱部材（第 2 熱交換手段）
- 5 3 温水パイプ（第 1 熱交換手段）
- 5 3 a 通路
- 5 4 外枠
- 5 5 真空断熱層（減圧乃至真空断熱層）
- 5 6 温水（熱交換媒体）
- 6 0 箱体

【書類名】 図面

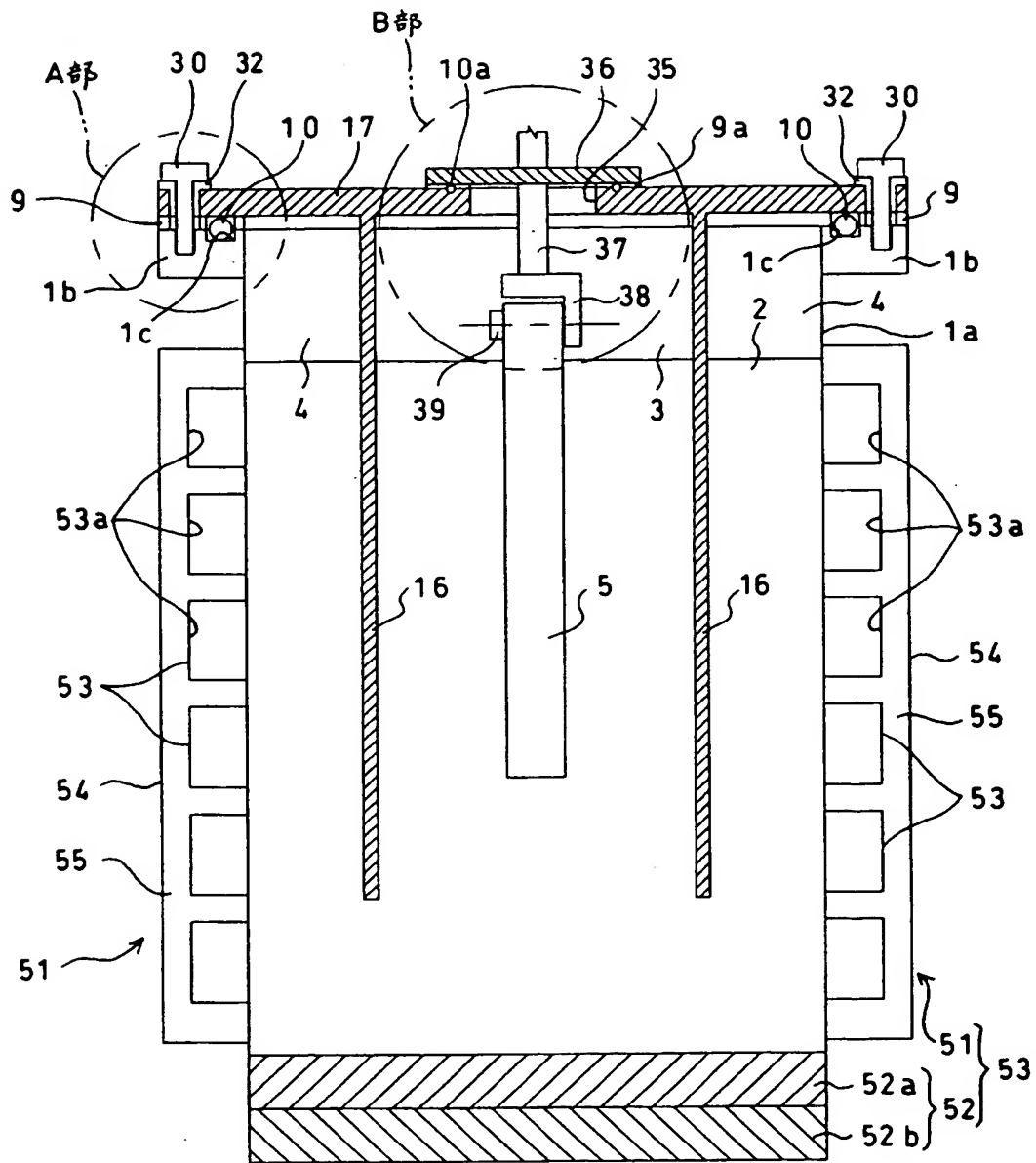
【図 1】



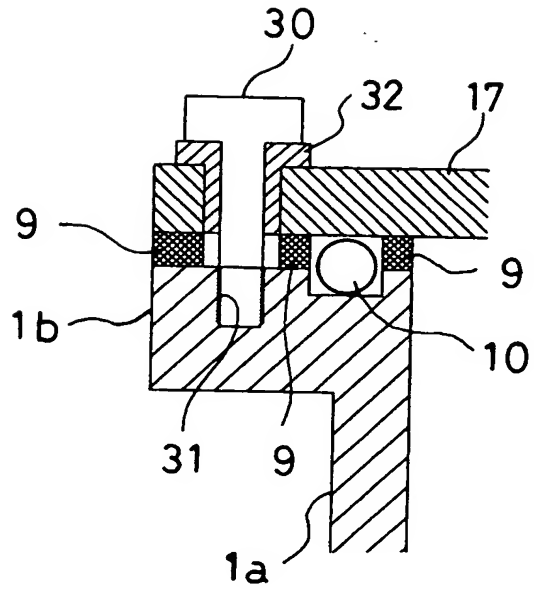
【図 2】



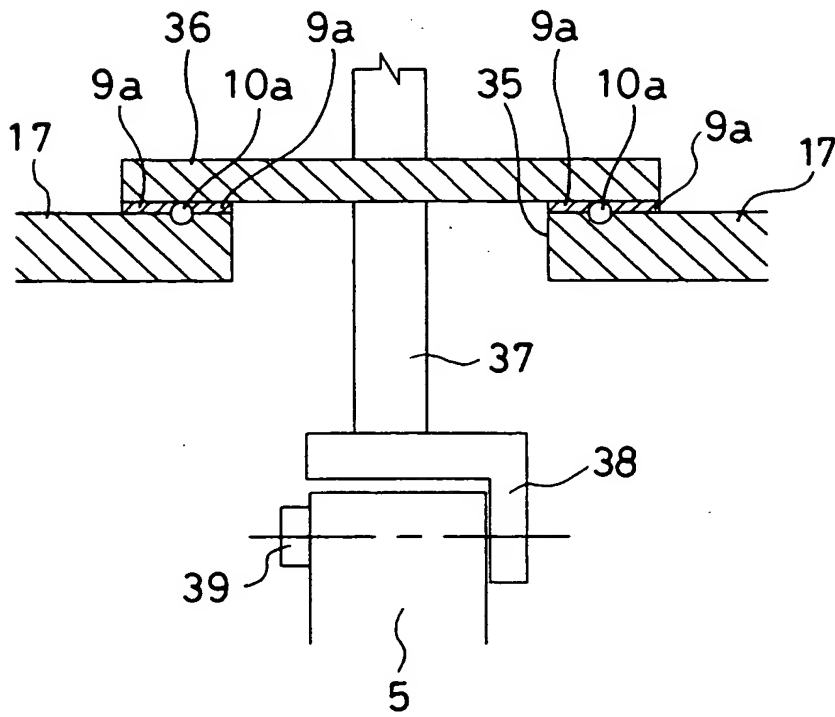
【図 3】



【図 4】

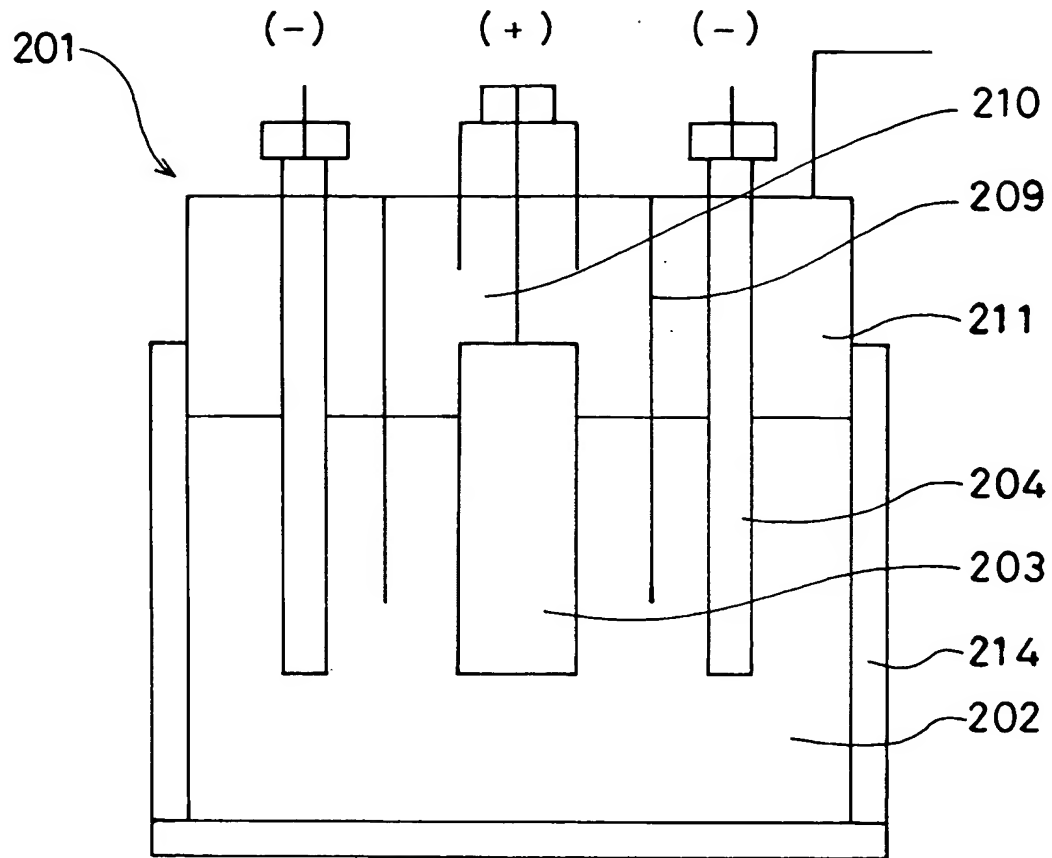


【図 5】





【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 小型化、電気絶縁性、ガスシール性、熱及びガスに対する安全性にも優れた熔融塩電解装置を提供することを目的とする。

【解決手段】 混合熔融塩からなる電解浴 2 を電気分解するための電解槽 1 が設けられた熔融塩電解装置であって、前記電解槽 1 の本体 1 a を加熱及び／又は冷却するための第 1 熱交換手段 5 3 と、前記第 1 熱交換手段 5 3 に対して更に空間を隔てた外周に、前記第 1 熱交換手段 5 3 を密閉して配置された外枠 5 4 と、前記外枠 5 4 内に形成された減圧乃至真空の断熱層 5 5 と、を備えてなる。さらに、電氣的絶縁性とガスシール性が要求される箇所に電気絶縁材料 9 とガスシール材 1 0 を備える。

【選択図】 図 3

特願 2 0 0 3 - 0 1 3 7 7 8

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 2 2 2 8 4 2 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市西淀川区竹島 5 丁目 7 番 1 2 号

氏 名

東洋炭素株式会社